

特 許 協 力 条 約

PCT

REC'D 04 JAN 2005

WIPO

PCT

特許性に関する国際予備報告（特許協力条約第二章）

(法第12条、法施行規則第56条)

[PCT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 WA-0866	今後の手続きについては、様式PCT/IPEA/416を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO3/14726	国際出願日 (日.月.年) 19.11.2003	優先日 (日.月.年) 20.11.2002
国際特許分類 (IPC) Int. Cl <sup>7</sup> C04B 35/576 38/00		
出願人 (氏名又は名称) 日本碍子株式会社		

1. この報告書は、PCT35条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。  
法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。

2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。

3. この報告には次の附属物件も添付されている。

a ☒ 附属書類は全部で 11 ページである。

☒ 補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面の用紙 (PCT規則70.16及び実施細則第607号参照)

☐ 第I欄4. 及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙

b ☐ 電子媒体は全部で (電子媒体の種類、数を示す)。  
配列表に関する補充欄に示すように、コンピュータ読み取り可能な形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。(実施細則第802号参照)

4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

☒ 第I欄 国際予備審査報告の基礎

☐ 第II欄 優先権

☐ 第III欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成

☐ 第IV欄 発明の単一性の欠如

☒ 第V欄 PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明

☐ 第VI欄 ある種の引用文献

☐ 第VII欄 国際出願の不備

☐ 第VIII欄 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 09.04.2004	国際予備審査報告を作成した日 09.12.2004	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 大橋 賢一	4T 8825
電話番号 03-3581-1101 内線 6791		

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (2004年1月)

## 第I欄 報告の基礎

1. この国際予備審査報告は、下記に示す場合を除くほか、国際出願の言語を基礎とした。

☐ この報告は、\_\_\_\_\_ 語による翻訳文を基礎とした。

それは、次の目的で提出された翻訳文の言語である。

☐ PCT規則12.3及び23.1(b)にいう国際調査

☐ PCT規則12.4にいう国際公開

☐ PCT規則55.2又は55.3にいう国際予備審査

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 1, 2, 6, 9, 10, 13-15, 17-21 ページ、出願時に提出されたもの

第 7, 16

ページ\*、04.08.2004 付けて国際予備審査機関が受理したもの

第 3-5, 8, 11, 12

ページ\*、29.11.2004 付けて国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 5, 10

項、出願時に提出されたもの

第 \_\_\_\_\_

項\*、PCT19条の規定に基づき補正されたもの

第 1, 3, 4, 7-9, 11, 12, 14

項\*、04.08.2004 付けて国際予備審査機関が受理したもの

第 \_\_\_\_\_

項\*、\_\_\_\_\_ 付けて国際予備審査機関が受理したもの

☒ 図面

第 1-4

ページ/図、出願時に提出されたもの

第 \_\_\_\_\_

ページ/図\*、

付けて国際予備審査機関が受理したもの

第 \_\_\_\_\_

ページ/図\*、

付けて国際予備審査機関が受理したもの

☐ 配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☒ 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書

第 \_\_\_\_\_

ページ

☒ 請求の範囲

第 2, 6, 13

項

☐ 図面

第 \_\_\_\_\_

ページ/図

☐ 配列表(具体的に記載すること)

☐ 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること)

4. ☐ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

☐ 明細書

第 \_\_\_\_\_

ページ

☐ 請求の範囲

第 \_\_\_\_\_

項

☐ 図面

第 \_\_\_\_\_

ページ/図

☐ 配列表(具体的に記載すること)

☐ 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること)

\* 4. に該当する場合、その用紙に“superseded”と記入されることがある。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条（PCT35条(2)）に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲	1, 3-5, 7-12, 14	有 無
	請求の範囲		
進歩性 (IS)	請求の範囲	1, 3-5, 7-12, 14	有 無
	請求の範囲		
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲	1, 3-5, 7-12, 14	有 無
	請求の範囲		

2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

文献1 : WO 02/81406 A1 (日本碍子株式会社) 2002.10.17

調査報告で引用した文献1には、炭化珪素粒子と金属珪素を含む炭化珪素質多孔体が、非晶質又は結晶質の珪酸塩化合物相を有すること、炭化珪素粒子同士が、金属珪素及び／又は珪酸塩化合物相により結合していることが記載されており、前記珪酸塩化合物相の具体例として、Mg-Al-Si系結晶質酸化物であるコーディライトの実施例が記載されている。

しかしながら、文献1は、前記珪酸塩化合物相が、Sr-Al-Si系非晶質酸化物である場合に、特に微細孔部分が埋設された組織が得られることについては記載も示唆もしていない。

したがって、本願発明（請求の範囲1, 3-5, 7-12, 14）は、新規性・進歩性を有する。

素質多孔体、及びその製造方法、並びにこのような炭化珪素質多孔体により構成されたハニカム構造体を提供することを目的とする。

上述の目的を達成するため、本発明は、以下の炭化珪素質多孔体及びその製造方法、並びにハニカム構造体を提供するものである。

〔1〕 骨材としての炭化珪素粒子と、結合材としての金属珪素とが、前記炭化珪素粒子相互間、及び／又は前記炭化珪素粒子と前記金属珪素との間に細孔を保持した状態で結合されてなる炭化珪素質多孔体であって、前記細孔のうち、前記炭化珪素粒子相互の表面間、又は前記炭化珪素粒子表面と前記金属珪素表面との間の最短距離が  $10\text{ }\mu\text{m}$  以下の部分である微細孔部分の少なくとも一部に埋設された、酸化ストロンチウム、酸化アルミニウム及び酸化珪素 ( $\text{SrO}:\text{Al}_2\text{O}_3:\text{SiO}_2$ ) を、各物質量比（モル比）で、 $(1.0:0.1:1.0) \sim (1.0:1.0:3.0)$  の割合で含有する非晶質の酸化物相を有し、

前記微細孔部分を含む前記細孔のうち前記酸化物相が埋設されていない部分の体積の総計（全気孔体積）に対する、前記微細孔部分のうち前記酸化物相が埋設されていない部分の体積の合計（前記微細孔部分の気孔体積）の割合が  $20\%$  以下であることを特徴とする炭化珪素質多孔体。

〔2〕 所定の平面で切断された前記炭化珪素質多孔体の切断面を撮影した平面画像を、画像解析処理することにより、前記微細孔部分を含む前記細孔のうち前記酸化物相が埋設されていない部分に由来して特定される気孔部と、前記炭化珪素粒子に由来して特定される炭化珪素粒子部と、前記金属珪素に由来して特定される金属珪素部と、前記酸化物相に由来して特定される酸化物相部とに区別し、区別された前記平面画像上で、前記炭化珪素粒子部と、前記金属珪素部及び前記酸化物相部とが接触する部分の長さの単位面積 ( $1\text{mm}^2$ ) あたりの総計（接触長さ） $L$  ( $\text{mm}/\text{mm}^2$ ) と、前記炭化珪素質多孔体の気孔率  $\varepsilon$  (%) とが下記式（1）の関係を満たす前記〔1〕に記載の炭化珪素質多孔体。

$$L \geq -1.0\varepsilon + 90 \quad \dots (1)$$

〔3〕 前記炭化珪素粒子と、前記金属珪素及び前記酸化物相とが接触する部分の面積の総計に対する、前記炭化珪素粒子と、前記酸化物相とが接触する部分の面積の合計の割合が  $10 \sim 70\%$  である前記〔1〕又は〔2〕に記載の

炭化珪素質多孔体。

〔4〕前記炭化珪素粒子と、前記金属珪素及び前記酸化物相とが接触する部分の面積の総計に対する、前記炭化珪素粒子と、前記酸化物相とが接触する部分の面積の合計の割合が25～50%である前記〔3〕に記載の炭化珪素質多孔体。

〔5〕前記酸化物 ( $\text{SrO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ) の熔融温度が1000～1400℃である前記〔1〕に記載の炭化珪素質多孔体。

〔6〕前記酸化物相の熔融粘度が、前記金属珪素の熔融粘度よりも低い前記〔5〕に記載の炭化珪素質多孔体。

〔7〕前記炭化珪素粒子と前記金属珪素との合計質量に対する、前記酸化物相の質量の割合が1.0～10.0質量%である前記〔5〕又は〔6〕に記載の炭化珪素質多孔体。

〔8〕前記炭化珪素粒子と前記金属珪素との合計質量に対する、前記酸化物相の質量の割合が4.0～8.0質量%である前記〔7〕に記載の炭化珪素質多孔体。

〔9〕前記〔1〕～〔8〕のいずれかに記載の炭化珪素質多孔体により構成されることを特徴とするハニカム構造体。

〔10〕骨材としての炭化珪素粒子と、結合材としての金属珪素とが、前記炭化珪素粒子相互間、及び／又は前記炭化珪素粒子と前記金属珪素との間に細孔を保持した状態で結合されてなる炭化珪素質多孔体の製造方法であって、

炭化珪素粒子と金属珪素とに、前記炭化珪素粒子と前記金属珪素との合計量100質量部に対して、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素を含有する化合物をそれぞれの酸化物 ( $\text{SrO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ) に換算して、1.0～10.0質量部の範囲内であって、かつ、焼成することによって、生成する炭化珪素質多孔体の一部を構成するこれらの酸化物相に含まれる、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素の酸化物の含有比 ( $\text{SrO} : \text{Al}_2\text{O}_3 : \text{SiO}_2$ ) が各物質質量比 (モル比) で (1.0 : 0.1 : 1.0) ～ (1.0 : 1.0 : 3.0) となるように、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素を含有する前記化合物の種類、及び／又は添加量を調整し、混合して原料を得、得られた前記原料を所定形状に成形して成形体を得、得られた成形体を脱脂した後に焼成して、前記炭化珪素粒子相互間に形成された細孔のうち、前記炭化珪素粒子相互の表面間、又は前記炭化珪素粒子表面と前記金属珪素表面との間の最短距離が10  $\mu\text{m}$ 以下の部分である微細孔部

分の少なくとも一部に、珪素、アルミニウム及びストロンチウムのそれぞれの酸化物を含有する非晶質の酸化物相を、前記微細孔部分を含む前記細孔の内前記酸化物相が埋設されていない部分の体積の総計（全気孔体積）に対する、前記微細孔部分のうち前記酸化物相が埋設されていない部分の体積の合計（前記微細孔部分の気孔体積）の割合が20%以下となるように埋設させることを特徴とする炭化珪素質多孔体の製造方法。

〔11〕前記炭化珪素粒子と前記金属珪素とに加える、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素を含む前記化合物のそれぞれの前記酸化物（ $\text{SrO}$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{SiO}_2$ ）に換算した量を、前記炭化珪素粒子と前記金属珪素との合計量100質量部に対して、4.0～8.0質量部とする前記〔10〕に記載の炭化珪素質多孔体の製造方法。

#### 図面の簡単な説明

図1は、本発明の炭化珪素質多孔体の一の実施の形態を模式的に示す断面図である。

図2は、本発明の実施例の炭化珪素質多孔体における、気孔率 $\varepsilon$ （%）の値に対して接触長さ $L$ （ $\text{mm}/\text{mm}^2$ ）をプロットしたグラフである。

図3は、本発明の実施例1の炭化珪素質多孔体の電子顕微鏡写真である。

図4は、本発明の実施例2の炭化珪素質多孔体の電子顕微鏡写真である。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の炭化珪素質多孔体及びその製造方法、並びにハニカム構造体の実施の形態を、図面を参照しつつ具体的に説明する。

てもよい。

上述した微細孔部分 6 を含む細孔 4 のうち酸化物相 5 が埋設されていない部分の体積、及び微細孔部分 6 のうち酸化物相 5 が埋設されていない部分の体積は、例えば、水銀ポロシメーター等を用いて測定した細孔径分布から算出することができる。また、炭化珪素質多孔体 1 の断面を走査型電子顕微鏡 (SEM) 等により撮影し、複数の断面において撮影された画像を解析して積分値として算出することもできる。

また、本実施の形態においては、炭化珪素粒子 2 と、金属珪素 3 及び酸化物相 5 とが接触する部分の長さの単位面積 ( $1 \text{ mm}^2$ ) あたりの総計を「接触長さ  $L$  ( $\text{mm}/\text{mm}^2$ )」とした場合に、炭化珪素質多孔体 1 の気孔率  $\varepsilon$  (%) と、前述した接触長さ  $L$  ( $\text{mm}/\text{mm}^2$ ) とが下記式 (1) の関係を満たすことが好ましい。

$$L \geq -1.0\varepsilon + 90 \quad \dots (1)$$

上記式 (1) は、所定の気孔率における炭化珪素粒子 2 間の結合の強さを判定する評価方法であり、前記気孔率  $\varepsilon$  (%) と前記接触長さ  $L$  ( $\text{mm}/\text{mm}^2$ ) とが上記式 (1) の関係を満たすときに、炭化珪素質多孔体 1 が DPF の構成材料として優れた強度を有すると判定することができる。具体的には、まず試料となる炭化珪素質多孔体 1 を切断して所定の切断面を出す。このとき、切断面を均一な平面とするために、適宜、切断面を研磨してもよい。この切断面を走査型電子顕微鏡 (SEM) 等を用いて撮影した平面画像を、例えば、スキャナー等の画像取込み手段を使用して PC (パーソナルコンピュータ) をはじめとする計算機に取り込む。取り込まれた平面画像を、所定の画像解析の手法により、炭化珪素粒子 2 に由来して特定される炭化珪素粒子部と、金属珪素 3 に由来して特定される金属珪素部と、酸化物相 6 に由来して特定される酸化物相部と、微細孔部分 6 を含む細孔 4 のうち酸化物相 6 が埋設されていない部分に由来して特定される部分 (気孔部) とに区別して抽出する。抽出した炭化珪素粒子 2 (炭化珪素粒子部) と、金属珪素 3 (金属珪素部) 及び酸化物相 5 (酸化物相部) との境界に所定の画像処理方法を適用することにより、一画素分の幅をもつ境界線を抽出し、その長さの単位面積 ( $1 \text{ mm}^2$ ) あたりの総計を接触長さ  $L$  ( $\text{mm}/\text{mm}^2$ ) とする

また、本実施の形態においては、炭化珪素粒子 2 と、金属珪素 3 及び酸化物相 5 とが接触する部分の面積の総計に対する、炭化珪素粒子 2 と、酸化物相 5 とが接触する部分の面積の合計の割合が 10～70%であることが好ましい。炭化珪素粒子 2 と、酸化物相 5 とが接触する部分の面積の割合が 10%未満であると、炭化珪素質多孔体 1 の機械的強度を十分に高めることができないことがある。また、炭化珪素粒子 2 と、酸化物相 5 とが接触する部分の面積の割合が 70%を超えると、炭化珪素粒子 2 と金属珪素 3 の接触が不十分となり、熱伝導率が低下してしまうという恐れがある。なお、炭化珪素粒子 2 と、金属珪素 3 及び酸化物相 5 とが接触する部分の面積の総計、及び炭化珪素粒子 2 と、酸化物相 5 とが接触する部分の面積の合計は、例えば、炭化珪素質多孔体 1 の研磨面を、走査型電子顕微鏡 (SEM) 等を用いて撮影し、厚さ方向に複数の断面において撮影された画像をコンピュータ画像解析により積分値として算出することができる。また、前述した所定の気孔率における炭化珪素粒子 2 間の結合の強さを判定する評価方法と同様の画像解析手法を用いて抽出した境界線の長さ (界面長さ) を近似的に用いることもできる。なお、高熱伝導率であるとともに機械的強度の高い炭化珪素質多孔体 1 とするといった観点からは、炭化珪素粒子 2 と、金属珪素 3 及び酸化物相 5 とが接触する部分の面積の総計に対する、炭化珪素粒子 2 と、酸化物相 5 とが接触する部分の面積の合計の割合が 25～50%であることがさらに好ましい。

本実施の形態においては、酸化物相 5 が非晶質であるとともに、酸化物相 5 がストロンチウム、アルミニウム及び珪素の酸化物 ( $\text{SrO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ) 全てを含み、酸化物相 5 における、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素のそれぞれの酸化物の含有比 ( $\text{SrO}:\text{Al}_2\text{O}_3:\text{SiO}_2$ ) が各物質質量比 (モル比) で (1.0:0.1:1.0)～(1.0:1.0:3.0)であることが必須である。

このように構成することによって、それぞれの酸化物を 3 元系として共融点を下げることで、焼成の際に、炭化珪素粒子 2 及び／又は金属珪素 3 の表面を覆っ



$\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ) に換算して、1.0～10.0質量部加えて原料を得る。なお、本発明においては、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素を含む化合物は、ストロンチウムを含むアルカリ土類金属 ( $\text{Mg}$ ,  $\text{Ca}$ ,  $\text{Sr}$ ,  $\text{Ba}$ )、アルミニウム及び珪素のうち一種類のみ含有してもよく、複数種類含有してもよい。添加する際は、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素を含む化合物を一種類のみ添加してもよく、複数種類添加してもよいが、最終的に形成される酸化物相がアルカリ土類金属のうち少なくともストロンチウムと、アルミニウム、及び珪素を含むようにすればよい。また、複数種類添加する場合は、添加する量を互いに異ならせてもよく、等分してもよい。また、この際、必要に応じて有機バインダー等の成形助剤を添加してもよい。なお、炭化珪素粒子や金属珪素には、鉄、アルミニウム、及びカルシウム等の微量の不純物を含有する場合もあるが、そのまま使用してもよく、薬品洗浄等の化学的処理を施して精製したものを使用してもよい。加える化合物をそれぞれの酸化物 ( $\text{SrO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ) に換算して1.0質量部未満とすると、得られる炭化珪素質多孔体の強度を十分に向上させる効果を得ることができない。また、10.0質量部を超えると、化合物により形成される酸化物相の量が多すぎるために焼成収縮が大きくなり、得られる炭化珪素質多孔体の気孔率が低下して、例えば、DPF等のフィルタとして用いた場合に、圧力損失が大きくなりすぎる。化合物に含有されるストロンチウムは、酸化物相を効率的に形成することができること、及び入手・取り扱い等が容易なことから酸化ストロンチウム ( $\text{SrO}$ ) や炭酸ストロンチウム ( $\text{SrCO}_3$ ) の状態で含有されることが好ましい。同様にアルミニウムは、三酸化二アルミニウム ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) や金属アルミニウムの状態で含有されることが好ましい。なお、この際の金属アルミニウムは、金属珪素の不純物として含有されてもよい。同じく珪素は、二酸化珪素 ( $\text{SiO}_2$ ) やコロイダルシリカの状態で含有されることが好ましい。なお、この際の二酸化珪素は、炭化珪素粒子及び／又は金属珪素の表面を覆う酸化物皮膜 ( $\text{SiO}_2$ ) として含有されてもよい。

次に、このようにして得られた原料を混合及び混練して成形用の坯土とし、この坯土をハニカム形状等をはじめとする所定の形状に成形し、これを仮焼して有機バインダーを脱脂して成形体を得る。

次に、得られた成形体を焼成して、炭化珪素粒子相互間に形成された細孔の少なくとも一部に、珪素、アルミニウム及びアルカリ土類金属のそれぞれの酸化物を含有する酸化物相を、微細孔部分を含む細孔のうち酸化物相が埋設されていない部分の体積の総計（全気孔体積）に対する、微細孔部分のうち酸化物相が埋設されていない部分の体積の合計（微細孔部分の気孔体積）の割合が20%以下となるように埋設させて、多孔質構造の多孔体を得ることを特徴とする。

本実施の形態の製造方法においては、焼成することによって得られた多孔質構造の多孔体を構成する酸化物相に含まれる、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素の酸化物の含有比（ $\text{SrO}:\text{Al}_2\text{O}_3:\text{SiO}_2$ ）が各物質質量比（モル比）で（1.0:0.1:1.0）～（1.0:1.0:3.0）となるように、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素を含有する化合物の種類、及び／又は添加量を調整することが必要である。

原料として加えられた、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素を含有する化合物は焼成時に分解又は酸化され、熔融する。この際、熔融するストロンチウム、アルミニウム及び珪素の酸化物は3元系として、その共融点を下げ、さらに粘度を低下させる。これにより炭化珪素粒子及び／又は金属珪素の表面の酸化物皮膜が熔融除去され、炭化珪素粒子を結合する金属珪素の濡れ性を良好にし、炭化珪素粒子を結合する接合部分をより太くすることができる。また、余った酸化物相は、粘度が低下しているため、多孔体の細孔内、特に、孔径の小さい微細孔部分に入り込み易くなり、その状態で凝固して炭化珪素粒子相互間の結合を補助するため、その機械的強度が高くなる。

なお、高気孔率であるとともに機械的強度の高い炭化珪素質多孔体を製造するといった観点からは、本実施の形態においては、炭化珪素粒子と金属珪素とに加える、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素を含む化合物のそれぞれの酸化物（ $\text{SrO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ）に換算した量を、炭化珪素粒子と金属珪素との合計量100質量部に対して、4.0～8.0質量部とすることがさらに好ましい。

なお、本実施の形態においては、仮焼は金属珪素が熔融する温度より低い温度にて行うことが好ましい。具体的には、150～700℃程度の所定の温度で一

また、作製した各炭化珪素質多孔体を構成する酸化物相における、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素のそれぞれの酸化物の各物質質量比（モル比）（ $\text{SrO} : \text{Al}_2\text{O}_3 : \text{SiO}_2$ ）と、骨材としての炭化珪素粒子と結合材としての金属珪素との合計質量に対する、酸化物相の質量の割合（質量％）（以下、単に酸化物相の質量の割合（質量％）ということがある）とを、添加した化合物と炭化珪素粒子や金属珪素原料に不純物として含まれる化合物とから算出した。結果を表1に示す。また、これらの値は、作製した炭化珪素質多孔体の研磨面に存在する酸化物相に、EDS点分析等によって各元素（ $\text{Sr}$ 、 $\text{Al}$ 、 $\text{Si}$ 、 $\text{O}$ ）に固有の特性X線を測定して定量する、又は、所定の化学分析等により定量することで算出することもできるが、測定方法は上記に限定されるものではない。

#### （画像解析）

画像解析用アプリケーション（Image-pro Plus（商品名）（MEDIA CYBERNETICS社製））を使用して、各炭化珪素質多孔体の画像解析を実施した。具体的には、まず試料となる炭化珪素質多孔体を切断して所定の切断面を出す。このとき、切断面を均一な平面とするために、適宜、切断面を研磨してもよい。この切断面を走査型電子顕微鏡（SEM）等を用いて撮影した平面画像を、例えば、スキャナー等の画像取込み手段を使用してPC（パーソナルコンピュータ）をはじめとする計算機に取り込む。取り込まれた平面画像を、所定の画像解析の手法により、図1に示すような炭化珪素粒子2、金属珪素3、酸化物相5および微細孔部分6を含む細孔4のうち酸化物相5が埋設されていない部分（気孔部）とに区別して抽出する。抽出した炭化珪素粒子2と、金属珪素3及び酸化物相5との境界に所定の画像処理方法を適用することにより、一画素分の幅をもつ境界線を抽出し、その長さの単位面積（ $1\text{mm}^2$ ）あたりの総計を接触長さ $L$ （ $\text{mm}/\text{mm}^2$ ）として算出した。得られた結果を表1に示す。また、気孔率 $\varepsilon$ （％）の値に対して接触長さ $L$ （ $\text{mm}/\text{mm}^2$ ）をプロットしたグラフを図2に示す。なお、図2中の直線は、下式（1）の下限值に基いて描いた直線である。

$$L \geq -1.0\varepsilon + 90 \quad \cdots (1)$$

また、炭化珪素粒子と、金属珪素及び酸化物相とが接触する部分の面積の総計

## 請 求 の 範 囲

1. (補正後) 骨材としての炭化珪素粒子と、結合材としての金属珪素とが、前記炭化珪素粒子相互間、及び／又は前記炭化珪素粒子と前記金属珪素との間に細孔を保持した状態で結合されてなる炭化珪素質多孔体であって、

前記細孔のうち、前記炭化珪素粒子相互の表面間、又は前記炭化珪素粒子表面と前記金属珪素表面との間の最短距離が $10\mu\text{m}$ 以下の部分である微細孔部分の少なくとも一部に埋設された、酸化ストロンチウム、酸化アルミニウム及び酸化珪素( $\text{SrO}:\text{Al}_2\text{O}_3:\text{SiO}_2$ )を、各物質質量比(モル比)で、(1.0:0.1:1.0)～(1.0:1.0:3.0)の割合で含有する非晶質の酸化物相を有し、

前記微細孔部分を含む前記細孔のうち前記酸化物相が埋設されていない部分の体積の総計(全気孔体積)に対する、前記微細孔部分のうち前記酸化物相が埋設されていない部分の体積の合計(前記微細孔部分の気孔体積)の割合が20%以下であることを特徴とする炭化珪素質多孔体。

2. (削除)

3. (補正後) 所定の平面で切断された前記炭化珪素質多孔体の切断面を撮影した平面画像を、画像解析処理することにより、前記微細孔部分を含む前記細孔のうち前記酸化物相が埋設されていない部分に由来して特定される気孔部と、前記炭化珪素粒子に由来して特定される炭化珪素粒子部と、前記金属珪素に由来して特定される金属珪素部と、前記酸化物相に由来して特定される酸化物相部とに区別し、区別された前記平面画像上で、前記炭化珪素粒子部と、前記金属珪素部及び前記酸化物相部とが接触する部分の長さの単位面積( $1\text{mm}^2$ )あたりの総計(接触長さ) $L(\text{mm}/\text{mm}^2)$ と、前記炭化珪素質多孔体の気孔率 $\varepsilon(\%)$ とが下記式(1)の関係を満たす請求項1に記載の炭化珪素質多孔体。

$$L \geq -1.0\varepsilon + 90 \quad \dots (1)$$

4. (補正後) 前記炭化珪素粒子と、前記金属珪素及び前記酸化物相とが接触する部分の面積の総計に対する、前記炭化珪素粒子と、前記酸化物相とが接触する部分の面積の合計の割合が10～70%である請求項1又は3に記載の炭化珪素質多孔体。

5. 前記炭化珪素粒子と、前記金属珪素及び前記酸化物相とが接触する部分の

面積の総計に対する、前記炭化珪素粒子と、前記酸化物相とが接触する部分の面積の合計の割合が25～50%である請求項4に記載の炭化珪素質多孔体。

6. (削除)

7. (補正後) 前記酸化物( $\text{SrO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ )の熔融温度が1000～1400℃である請求項1に記載の炭化珪素質多孔体。

8. (補正後) 前記酸化物相の熔融粘度が、前記金属珪素の熔融粘度よりも低い請求項7に記載の炭化珪素質多孔体。

9. (補正後) 前記炭化珪素粒子と前記金属珪素との合計質量に対する、前記酸化物相の質量の割合が1.0～10.0質量%である請求項7又は8に記載の炭化珪素質多孔体。

10. 前記炭化珪素粒子と前記金属珪素との合計質量に対する、前記酸化物相の質量の割合が4.0～8.0質量%である請求項9に記載の炭化珪素質多孔体。

11. (補正後) 請求項1、3～5、及び7～10のいずれか一項に記載の炭化珪素質多孔体により構成されることを特徴とするハニカム構造体。

12. (補正後) 骨材としての炭化珪素粒子と、結合材としての金属珪素とが、前記炭化珪素粒子相互間、及び／又は前記炭化珪素粒子と前記金属珪素との間に細孔を保持した状態で結合されてなる炭化珪素質多孔体の製造方法であって、

炭化珪素粒子と金属珪素とに、前記炭化珪素粒子と前記金属珪素との合計量100質量部に対して、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素を含有する化合物をそれぞれの酸化物( $\text{SrO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ )に換算して、1.0～10.0質量部の範囲内であって、かつ、焼成することによって、生成する炭化珪素質多孔体の一部を構成するこれらの酸化物相に含まれる、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素の酸化物の含有比( $\text{SrO}:\text{Al}_2\text{O}_3:\text{SiO}_2$ )が各物質量比(モル比)で(1.0:0.1:1.0)～(1.0:1.0:3.0)となるように、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素を含有する前記化合物の種類、及び／又は添加量を調整し、混合して原料を得、得られた前記原料を所定形状に成形して成形体を得、得られた成形体を脱脂した後に焼成して、前記炭化珪素粒子相互間に形成された細孔のうち、前記炭化珪素粒子相互の表面間、又は前記炭化珪素粒子表面と前記金属珪素表面との間の最短距離が10μm以下の部分である微細孔部分の少なくとも一部に、珪素、アルミニウム及びストロンチウムのそれぞれの酸化物を含有する非晶質の酸化物相を、前記微細孔部分を含む前記細孔の内前記酸化物相

が埋設されていない部分の体積の総計（全気孔体積）に対する、前記微細孔部分のうち前記酸化物相が埋設されていない部分の体積の合計（前記微細孔部分の気孔体積）の割合が20%以下となるように埋設させることを特徴とする炭化珪素質多孔体の製造方法。

13. (削除)

14. (補正後) 前記炭化珪素粒子と前記金属珪素とに加える、ストロンチウム、アルミニウム及び珪素を含む前記化合物のそれぞれの前記酸化物 ( $\text{SrO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ) に換算した量を、前記炭化珪素粒子と前記金属珪素との合計量100質量部に対して、4.0～8.0質量部とする請求項12に記載の炭化珪素質多孔体の製造方法。